

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re Patent Application of ) Attorney Docket No.: **SUGI0070**  
Tadahiro OHMI et al ) Confirmation No.: 2969  
Serial No.: 09/905,209 ) Group Art Unit: 1725  
Filed: July 12, 2001 ) Examiner: Kevin P. Kerns  
For: REACTOR FOR GENERATING ) Date: January 28, 2005  
MOISTURE )

**SUBMISSION OF CLAIM FOR PRIORITY AND PRIORITY DOCUMENT**

Commissioner for Patents  
P.O. Box 1450  
Alexandria, VA 22313-1450

Sir:

It is respectfully requested that this application be given the benefit of the foreign filing date under the provisions of 35 U.S.C. §119 of the following, a certified copy of which is submitted herewith:

| <b><u>Application No.</u></b> | <b><u>Country of Origin</u></b> | <b><u>Filing Date</u></b> |
|-------------------------------|---------------------------------|---------------------------|
| PCT/JP00/03659                | PCT                             | 11/18/2004                |

Respectfully submitted,

*GRIFFIN & SZIPL, P.C.*

  
\_\_\_\_\_  
Joerg-Uwe Szimpl  
Registration No. 31,799

GRIFFIN & SZIPL, P.C.  
Suite PH-1  
2300 Ninth Street, South  
Arlington, VA 22204

Telephone: (703) 979-5700  
Facsimile: (703) 979-7429  
Email: gands@szipl.com  
Customer No.: 24203

CERTIFIED COPY OF  
PRIORITY DOCUMENT

日 本 国 特 許 庁

JAPAN PATENT OFFICE

紙添付の書類は下記の出願書類の謄本に相違ないことを証明する。  
This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed  
in this Office.

願 年 月 日  
Date of Application: 2000年 6月 5日

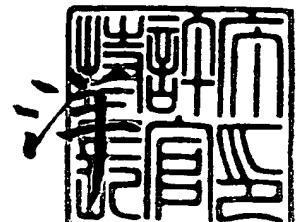
願 番 号  
Application Number: PCT/JP00/03659

願 人  
Applicant(s): 株式会社フジキン  
大見 忠弘  
川田 幸司  
池田 信一  
森本 明弘  
皆見 幸男  
坪田 憲士  
本井傳 晃央  
平井 暢  
米華 克典  
平尾 圭志

2004年 11月 18日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小 川



|           |   |   |
|-----------|---|---|
| 0         | 受理官庁記入欄   | PCT/JP 00/03659   |
| 0-1       | 国際出願番号.   |   |
| 0-2       | 国際出願日   | 05.06.00  |
| 0-3       | (受付印)   | PCT International Application<br>日本国特許庁   |
| 0-4       | 様式-PCT/RO/101<br>この特許協力条約に基づく<br>国際出願願書は、<br>右記によって作成された。 | PCT-EASY Version 2.90<br>(updated 10.05.2000)                                   |
| 0-4-1     |   |   |
| 0-5       | 申立て<br>出願人は、この国際出願が特許<br>協力条約に従って処理されるこ<br>とを請求する。        |   |
| 0-6       | 出願人によって指定された<br>受理官庁                                      | 日本国特許庁 (RO/JP)  |
| 0-7       | 出願人又は代理人の書類記<br>号   | IP00T0501   |
| I         | 発明の名称   | 水分発生用反応炉  |
| II        | 出願人   |   |
| II-1      | この欄に記載した者は  | 出願人である (applicant only)   |
| II-2      | 右の指定国についての出願人で<br>ある。                                     | 米国を除くすべての指定国 (all designated<br>States except US)                               |
| II-4ja    | 名称  | 株式会社フジキン  |
| II-4en    | Name  | FUJIKIN INCORPORATED  |
| II-5ja    | あて名:  | 550-0012 日本国<br>大阪府 大阪市<br>西区立売堀2丁目3番2号   |
| II-5en    | Address:  | 3-2, Itachibori 2-chome, Nishi-ku<br>Osaka-shi, Osaka 550-0012<br>Japan         |
| II-6      | 国籍 (国名)   | 日本国 JP  |
| II-7      | 住所 (国名)   | 日本国 JP  |
| II-8      | 電話番号  | 81-06-6612-8531   |
| II-9      | ファクシミリ番号  | 81-06-6612-8541   |
| III-1     | その他の出願人又は発明者  |   |
| III-1-1   | この欄に記載した者は  | 出願人及び発明者である (applicant and<br>inventor)   |
| III-1-2   | 右の指定国についての出願人で<br>ある。                                     | すべての指定国 (all designated States)   |
| III-1-4ja | 氏名 (姓名)   | 大見 忠弘   |
| III-1-4en | Name (LAST, First)  | OHMI, Tadahiro  |
| III-1-5ja | あて名:  | 980-0813 日本国<br>宮城県 仙台市<br>青葉区米ヶ袋2丁目1番17-301号                                   |
| III-1-5en | Address:  | 1-17-301, Komegahukuro 2-chome, Aoba-ku<br>Sendai-shi, Miyagi 980-0813<br>Japan |
| III-1-6   | 国籍 (国名)   | 日本国 JP  |
| III-1-7   | 住所 (国名)   | 日本国 JP  |

|                                     |                                      |   |
|-------------------------------------|--------------------------------------|---|
| III-2<br>III-2-1                    | その他の出願人又は発明者<br>この欄に記載した者は           | 出願人及び発明者である (applicant and inventor)<br>米国のみ (US only)  |
| III-2-2                             | 右の指定国についての出願人である。                    |   |
| III-2-4ja<br>III-2-4en<br>III-2-5ja | 氏名(姓名)<br>Name (LAST, First)<br>あて名: | 川田 幸司<br>KAWADA, Kouji<br>550-0012 日本国<br>大阪府 大阪市<br>西区立売堀2丁目3番2号<br>株式会社フジキン内                      |
| III-2-5en                           | Address:                             | c/o Fujikin Incorporated<br>3-2, Itachibori 2-chome, Nishi-ku<br>Osaka-shi, Osaka 550-0012<br>Japan |
| III-2-6<br>III-2-7                  | 国籍 (国名)<br>住所 (国名)                   | 日本国 JP<br>日本国 JP  |
| III-3<br>III-3-1                    | その他の出願人又は発明者<br>この欄に記載した者は           | 出願人及び発明者である (applicant and inventor)<br>米国のみ (US only)  |
| III-3-2                             | 右の指定国についての出願人である。                    |   |
| III-3-4ja<br>III-3-4en<br>III-3-5ja | 氏名(姓名)<br>Name (LAST, First)<br>あて名: | 池田 信一<br>IKEDA, Nobukazu<br>550-0012 日本国<br>大阪府 大阪市<br>西区立売堀2丁目3番2号<br>株式会社フジキン内                    |
| III-3-5en                           | Address:                             | c/o Fujikin Incorporated<br>3-2, Itachibori 2-chome, Nishi-ku<br>Osaka-shi, Osaka 550-0012<br>Japan |
| III-3-6<br>III-3-7                  | 国籍 (国名)<br>住所 (国名)                   | 日本国 JP<br>日本国 JP  |
| III-4<br>III-4-1                    | その他の出願人又は発明者<br>この欄に記載した者は           | 出願人及び発明者である (applicant and inventor)<br>米国のみ (US only)  |
| III-4-2                             | 右の指定国についての出願人である。                    |   |
| III-4-4ja<br>III-4-4en<br>III-4-5ja | 氏名(姓名)<br>Name (LAST, First)<br>あて名: | 森本 明弘<br>MORIMOTO, Akihiro<br>550-0012 日本国<br>大阪府 大阪市<br>西区立売堀2丁目3番2号<br>株式会社フジキン内                  |
| III-4-5en                           | Address:                             | c/o Fujikin Incorporated<br>3-2, Itachibori 2-chome, Nishi-ku<br>Osaka-shi, Osaka 550-0012<br>Japan |
| III-4-6<br>III-4-7                  | 国籍 (国名)<br>住所 (国名)                   | 日本国 JP<br>日本国 JP  |

## 特許協力条約に基づく国際出願願書

IP00T0501

原本（出願用） - 印刷日時 2000年06月01日 (01.06.2000) 木曜日 09時16分26秒

|                                     |                                       |   |
|-------------------------------------|---------------------------------------|---|
| III-5<br>III-5-1                    | その他の出願人又は発明者<br>この欄に記載した者は            | 出願人及び発明者である (applicant and inventor)  |
| III-5-2                             | 右の指定国についての出願人である。                     | 米国のみ (US only)  |
| III-5-4ja<br>III-5-4en<br>III-5-5ja | 氏名 (姓名)<br>Name (LAST, First)<br>あて名: | 皆見 幸男<br>MINAMI, Yukio<br>550-0012 日本国<br>大阪府 大阪市<br>西区立売堀2丁目3番2号<br>株式会社フジキン内                      |
| III-5-5en                           | Address:                              | c/o Fujikin Incorporated<br>3-2, Itachibori 2-chome, Nishi-ku<br>Osaka-shi, Osaka 550-0012<br>Japan |
| III-5-6                             | 国籍 (国名)                               | 日本国 JP  |
| III-5-7                             | 住所 (国名)                               | 日本国 JP  |
| III-6<br>III-6-1                    | その他の出願人又は発明者<br>この欄に記載した者は            | 出願人及び発明者である (applicant and inventor)  |
| III-6-2                             | 右の指定国についての出願人である。                     | 米国のみ (US only)  |
| III-6-4ja<br>III-6-4en<br>III-6-5ja | 氏名 (姓名)<br>Name (LAST, First)<br>あて名: | 坪田 憲士<br>TUBOTA, Kenji<br>550-0012 日本国<br>大阪府 大阪市<br>西区立売堀2丁目3番2号<br>株式会社フジキン内                      |
| III-6-5en                           | Address:                              | c/o Fujikin Incorporated<br>3-2, Itachibori 2-chome, Nishi-ku<br>Osaka-shi, Osaka 550-0012<br>Japan |
| III-6-6                             | 国籍 (国名)                               | 日本国 JP  |
| III-6-7                             | 住所 (国名)                               | 日本国 JP  |
| III-7<br>III-7-1                    | その他の出願人又は発明者<br>この欄に記載した者は            | 出願人及び発明者である (applicant and inventor)  |
| III-7-2                             | 右の指定国についての出願人である。                     | 米国のみ (US only)  |
| III-7-4ja<br>III-7-4en<br>III-7-5ja | 氏名 (姓名)<br>Name (LAST, First)<br>あて名: | 本井傳 晃央<br>HONIDEN, Teruo<br>550-0012 日本国<br>大阪府 大阪市<br>西区立売堀2丁目3番2号<br>株式会社フジキン内                    |
| III-7-5en                           | Address:                              | c/o Fujikin Incorporated<br>3-2, Itachibori 2-chome, Nishi-ku<br>Osaka-shi, Osaka 550-0012<br>Japan |
| III-7-6                             | 国籍 (国名)                               | 日本国 JP  |
| III-7-7                             | 住所 (国名)                               | 日本国 JP  |

## 特許協力条約に基づく国際出願願書

IP00T0501

原本（出願用） - 印刷日時 2000年06月01日 (01.06.2000) 木曜日 09時16分26秒

|  |                                      |   |
|--|--------------------------------------|---|
| III-8<br>III-8-1                       | その他の出願人又は発明者<br>この欄に記載した者は           | 出願人及び発明者である (applicant and inventor)  |
| III-8-2                                | 右の指定国についての出願人である。                    | 米国のみ (US only)  |
| III-8-4ja<br>III-8-4en<br>III-8-5ja    | 氏名(姓名)<br>Name (LAST, First)<br>あて名: | 平井 暢<br>HIRAI, Touru<br>550-0012 日本国<br>大阪府 大阪市<br>西区立売堀2丁目3番2号<br>株式会社フジキン内                        |
| III-8-5en                              | Address:                             | c/o Fujikin Incorporated<br>3-2, Itachibori 2-chome, Nishi-ku<br>Osaka-shi, Osaka 550-0012<br>Japan |
| III-8-6                                | 国籍 (国名)                              | 日本国 JP  |
| III-8-7                                | 住所 (国名)                              | 日本国 JP  |
| III-9<br>III-9-1                       | その他の出願人又は発明者<br>この欄に記載した者は           | 出願人及び発明者である (applicant and inventor)  |
| III-9-2                                | 右の指定国についての出願人である。                    | 米国のみ (US only)  |
| III-9-4ja<br>III-9-4en<br>III-9-5ja    | 氏名(姓名)<br>Name (LAST, First)<br>あて名: | 米華 克典<br>KOMEHANA, Katunori<br>550-0012 日本国<br>大阪府 大阪市<br>西区立売堀2丁目3番2号<br>株式会社フジキン内                 |
| III-9-5en                              | Address:                             | c/o Fujikin Incorporated<br>3-2, Itachibori 2-chome, Nishi-ku<br>Osaka-shi, Osaka 550-0012<br>Japan |
| III-9-6                                | 国籍 (国名)                              | 日本国 JP  |
| III-9-7                                | 住所 (国名)                              | 日本国 JP  |
| III-10<br>III-10-1                     | その他の出願人又は発明者<br>この欄に記載した者は           | 出願人及び発明者である (applicant and inventor)  |
| III-10-2                               | 右の指定国についての出願人である。                    | 米国のみ (US only)  |
| III-10-4ja<br>III-10-4en<br>III-10-5ja | 氏名(姓名)<br>Name (LAST, First)<br>あて名: | 平尾 圭志<br>HIRAO, Keiji<br>550-0012 日本国<br>大阪府 大阪市<br>西区立売堀2丁目3番2号<br>株式会社フジキン内                       |
| III-10-5en                             | Address:                             | c/o Fujikin Incorporated<br>3-2, Itachibori 2-chome, Nishi-ku<br>Osaka-shi, Osaka 550-0012<br>Japan |
| III-10-6                               | 国籍 (国名)                              | 日本国 JP  |
| III-10-7                               | 住所 (国名)                              | 日本国 JP  |

## 特許協力条約に基づく国際出願願書

原本（出願用） - 印刷日時 2000年06月01日（01.06.2000）木曜日 09時16分26秒



IP00T0501

|          |   |   |            |
|----------|---|---|------------|
| IV-1     | 代理人又は共通の代表者、<br>通知のあて名<br>下記の者は国際機関において右<br>記のごとく出願人のために行動<br>する。   | 代理人 (agent)   |            |
| IV-1-1ja | 氏名(姓名)  | 杉本 丈夫   |            |
| IV-1-1en | Name (LAST, First)  | SUGIMOTO, Takeo   |            |
| IV-1-2ja | あて名:  | 541-0041 日本国<br>大阪府 大阪市<br>中央区北浜2丁目1番21号<br>北浜カタノビル   |            |
| IV-1-2en | Address:  | Kitahama-Katano Bldg.,<br>1-21, Kitahama 2-chome, Chuo-ku<br>Osaka-shi, Osaka 541-0041<br>Japan |            |
| IV-1-3   | 電話番号  | 81-06-6201-5508   |            |
| IV-1-4   | ファクシミリ番号  | 81-06-6201-5509   |            |
| IV-1-5   | 電子メール   | tspat@skyblue.ocn.ne.jp   |            |
| IV-2     | その他の代理人   | 筆頭代理人と同じあて名を有する代理人<br>(additional agent(s) with same address as<br>first named agent)           |            |
| IV-2-1ja | 氏名  | 三木 久巳   |            |
| IV-2-1en | Name(s)   | MIKI, Hisami  |            |
| V        | 国の指定  |   |            |
| V-1      | 広域特許<br>(他の種類の保護又は取扱いを<br>求める場合には括弧内に記載す<br>る。)   | EP: CH&LI DE FR GB IT NL  |            |
| V-2      | 国内特許<br>(他の種類の保護又は取扱いを<br>求める場合には括弧内に記載す<br>る。)   | CA CN IL KR SG US   |            |
| V-5      | 指定の確認の宣言<br>出願人は、上記の指定に加えて<br>、規則4.9(b)の規定に基づき、<br>特許協力条約のもとで認められ<br>る他の全ての国の指定を行う。<br>ただし、V-6欄に示した国の指<br>定を除く。出願人は、これらの<br>追加される指定が確認を条件と<br>していること、並びに優先日か<br>ら15月が経過する前にその確認<br>がなされない指定は、この期間<br>の経過時に、出願人によって取<br>り下げられたものとみなされる<br>ことを宣言する。 |   |            |
| V-6      | 指定の確認から除かれる国  | なし (NONE)   |            |
| VI       | 優先権主張   | なし (NONE)   |            |
| VII-1    | 特定された国際調査機関 (ISA<br>A)  | 日本国特許庁 (ISA/JP)   |            |
| VIII     | 照合欄   | 用紙の枚数   | 添付された電子データ |
| VIII-1   | 願書  | 6   | -          |
| VIII-2   | 明細書   | 17  | -          |
| VIII-3   | 請求の範囲   | 2   | -          |
| VIII-4   | 要約  | 1   | 要約書.txt    |
| VIII-5   | 図面  | 5   | -          |
| VIII-7   | 合計  | 31  |            |

## 特許協力条約に基づく国際出願願書

IP00T0501

原本（出願用） - 印刷日時 2000年06月01日（01.06.2000）木曜日 09時16分26秒

|         | 添付書類            | 添付   | 添付された電子データ |
|---------|-----------------|--|------------|
| VIII-8  | 手数料計算用紙         | ✓  | -          |
| VIII-16 | PCT-EASYディスク    | -  | フレキシブルディスク |
| VIII-17 | その他             | 納付する手数料に相当する特許印紙を貼付した書面  | -          |
| VIII-17 | その他             | 国際事務局の口座への振込みを証明する書面   | -          |
| VIII-18 | 要約書とともに提示する図の番号 | 1  |            |
| VIII-19 | 国際出願の使用言語名:     | 日本語 (Japanese)   |            |
| IX-1    | 提出者の記名押印        |  |            |
| IX-1-1  | 氏名(姓名)          | 杉本 丈夫  |            |
| IX-2    | 提出者の記名押印        |  |            |
| IX-2-1  | 氏名(姓名)          | 三木 久巳  |            |

## 受理官庁記入欄

|        |  |          |
|--------|--|----------|
| 10-1   | 国際出願として提出された書類の実際の受理の日                                   | 05.06.00 |
| 10-2   | 図面:  |          |
| 10-2-1 | 受理された  |          |
| 10-2-2 | 不足図面がある  |          |
| 10-3   | 国際出願として提出された書類を補完する書類又は図面であってその後期間内に提出されたものの実際の受理の日（訂正日） |          |
| 10-4   | 特許協力条約第11条(2)に基づく必要な補完の期間内の受理の日                          |          |
| 10-5   | 出願人により特定された国際調査機関  | ISA/JP   |
| 10-6   | 調査手数料未払いにつき、国際調査機関に調査用写しを送付していない                         |          |

## 国際事務局記入欄

|      |           |  |
|------|-----------|--|
| 11-1 | 記録原本の受理の日 |  |
|------|-----------|--|



# 明 細 書

## 水分発生用反応炉

### 技術分野

本発明は、主として半導体製造装置に於いて利用される水分発生用  
5 反応炉の改良に関するものであり、より詳細には、反応炉本体の内部  
の局所的な温度の過上昇を防止することにより、水素への着火や逆火、  
白金コーティング触媒層の剥離等の発生を完全に防止して、安全性の  
向上や反応炉の長寿命化、製造コストの大幅な引下げ等を可能にした  
水分発生用反応炉に関するものである。

### 10 背景技術

半導体製造に於けるシリコンへの酸化膜付けには、少なくとも10  
00SCCM（標準状態において1000cc/min）の流量の高  
純度水分を必要とする。

これ等の用途に供するため、本願発明者等は、先きに図6に示す様  
15 な構成の水分発生用反応炉を開発し、特願平10-297907号と  
してこれを公開している。

即ち、図6に於いてAは反応炉本体、1は入口側炉本体部材、1a  
はガス供給口、2は出口側炉本体部材、2aは水分ガス取出口、3は  
入口側内部空間、4は出口側内部空間、5は入口側反射体、6は出口  
20 側反射体、7は金属フィルター、8は白金コーティング触媒層であり、  
また、前記白金コーティング触媒層8は、出口側炉本体部材2の内表  
面に設けられており、出口側炉本体部材2の上にTiN等のバリヤー  
皮膜8aを設け、その上に白金コーティング皮膜8bを積層固着する  
ことにより形成されている。

25 水分の発生に際しては、ガス供給口1aから予かじめ所定の混合率  
で混合されたH<sub>2</sub>とO<sub>2</sub>の混合ガスGを反応炉本体A内へ供給する。  
反応炉本体Aの入口側内部空間3内へ供給された混合ガスGは、入口  
側反射体5及び金属フィルター7によって拡散され、出口側内部空間  
4内へ流入して白金コーティング皮膜8bと接触することにより、O<sub>2</sub>

及び $H_2$ の反応性が活性化される。

白金コーティング皮膜 8 b との接触により活性化された $H_2$ と $O_2$ とは、約 $300^{\circ}C \sim 500^{\circ}C$ 前後の高温下で反応をし、水分ガス（水蒸気）に転換される。また、発生した水分ガス（水蒸気）は、出口側  
5 反射体 6 と出口側炉本体部材 2 の内壁面との間隙 L を通って、水分ガス取出口 2 a から半導体製造用のプロセスチャンバー（図示省略）等へ供給されて行く。

尚、高温下で $O_2$ と $H_2$ とを反応させる水分反応炉本体 A は、その内部空間 3・4 内の温度を $H_2$ 又は $H_2$ 含有ガスの発火温度以下の温度に保持することにより、 $H_2$ と $O_2$ の爆発的な燃焼反応を防止しつ  
10 つ適宜の速度で両者を反応させ、所要流量の水分ガスを発生する。

上記図 6 の反応炉本体 A は、所望流量の高純度水分を極く小形の反応炉本体でもって連続的に、しかも高反応率の下で簡便に発生させることができ、優れた実用的効用を奏するものである。

15 しかし、図 6 の構成の水分発生炉にも、未だ解決すべき多くの問題が残されており、その中でも特に解決を急ぐ問題は、① $H_2$ への着火やガス供給口 1 a からガス供給源側への逆火をより完全に防止すること、及び②反応炉本体 A の全体の温度分布を均一化して、局部的な温度の過上昇による白金コーティング触媒層 8 の部分的な剥離・脱落を  
20 皆無にすると云う点である。

上述したように、水分発生用反応炉本体 A の内部空間内の温度は、 $H_2$ 又は $H_2$ 含有ガスの最低限界着火温度（約 $560^{\circ}C$ 、 $H_2$ と $O_2$ の混合率に応じて限界着火温度は約 $560^{\circ}C$ より上昇する）よりも相当に低い約 $450^{\circ}C \sim 500^{\circ}C$ の温度に保持されており、 $H_2$ と $O_2$ の  
25 爆発的な燃焼反応は抑制されるようになっている。

しかし、水分発生用反応炉 A の内部空間 3・4 の温度を常に完全に前記限界着火温度以下の温度に保持することは、現実にはなかなか困難なことであり、入口側炉本体部材 1 や出口側炉本体部材 2 等の内壁面の温度が、何等かの原因で局部的に限界着火温度以上に上昇するこ

とがある。

尚、万一、前記入口側炉本体部材 1 や出口側炉本体部材 2 の内壁面温度が局部的に限界着火温度以上に上昇したとしても、常に  $O_2$  と  $H_2$

との爆発的な燃焼反応が起って、ガス供給源側への逆火を生ずるとは  
5 限らず、一般的には着火や逆火を生じないケースが多い。しかし、混合ガス G 内の  $H_2$  濃度が特に高い場合には、稀に  $H_2$  への着火或いはガス供給源側への逆火を生ずることがある。

前記  $H_2$  への着火やガス供給源側への逆火を生ずる原因、即ち両炉本体部材 1・2 や金属フィルター 7 等の局部的で且つ急激な温度の過  
10 上昇を生ずる原因は、不明であって、未だ十分にその原因は特定されていない。

しかし、本願発明者等は、これまでの水分発生用反応炉の製造並びに使用の経験からして、反応炉本体 A を構成する入口側炉本体部材 1 の内壁面や入口側反射体 5、出口側反射体 6、金属フィルター 7 等の  
15 外表面の金属触媒作用により、混合ガス G 内の  $H_2$  と  $O_2$  が活性化され、前記内壁面等に局部的で且つ急激な温度の過上昇を生じたことが、 $H_2$  への着火の第 1 原因であると想定している。

即ち、入口側炉本体部材 1 や両反射体 5・6、金属フィルター 7 等は全てステンレス鋼 (SUS 316L) により形成されている。そして、これ等各部材の外表面は、通常自然に形成された各種金属の酸化物皮膜や不働態皮膜によって覆われており、これによってステンレス  
20 鋼の外表面が本来保持している所謂触媒活性は、抑制されている。

ところが、約  $450^{\circ}C \sim 500^{\circ}C$  程度の高温下で、 $H_2$  濃度の高い混合ガス G 中に前記酸化物皮膜や不働態皮膜が長時間晒されると、酸  
25 化物皮膜等がステンレス鋼の表面から剥離脱落したり、あるいは酸化物皮膜が還元されて金属外表面が局部的に露出される。その結果、ステンレス鋼の外表面の金属触媒活性が発揮され、 $O_2$  と  $H_2$  との反応が局部的に急速且つ高密度で進行し、これによって反応炉本体 A の内部空間 3・4 内の白金コーティング触媒層 8 を設けた部分以外の局部

の表面温度が、 $H_2$ （又は $H_2$ 含有ガス）の着火限界温度以上に上昇したものと想定される。

5 一方、一般的に出口側反応炉本体 2 の白金コーティング触媒層 8 を設けた内壁面の温度は、出口側反応炉本体 2 の中心部ほど高温になり易く、特に、 $N_2$ 希釈等により混合ガス G の流速及び流量を増して使用する場合には、出口側反射体 6 の外周端から中心側寄りの部分の温度が一層上昇することが判っている。

10 従って、もしも着火又はガス供給源側の逆火を生ずる原因が、白金コーティング触媒層 8 を設けた出口側炉本体部材 2 の内壁面側にあるとすれば、それは、出口側反射体 6 の外周縁部と対向する白金コーティング触媒層 8 の部分に於いて、隙間 L 内への混合ガス G の流入量が急増することにより $H_2$ と $O_2$ との反応がより活発となり、これによって内壁面の温度が局部的に急上昇して限界着火温度に達し、 $H_2$ への着火や或いは白金コーティング触媒層 8 の部分的な剥離を生じたもの  
15 と想定される。

尚、前記反応炉本体 A の内部空間 3・4 内の局部的な温度の過上昇を防止するためには、反応炉本体 A 自体を大形化してその熱容量を増大させると共に、放熱又は冷却装置を設けて、反応炉本体 A の冷却性能の強化を図るのが通常の方策である。

20 しかし、半導体製造装置は一般にクリーンルーム内に設置されるものであり、その設置スペースを大きく取ることは困難である。そのため、半導体製造装置に付随する水分発生用反応炉は、その小型化に対する要求が特に厳しく、反応炉本体 A の大型化や冷却装置の増強を以って、上述の如き水分発生用反応炉の内部に於ける局部的な温度の過  
25 上昇や温度の過上昇による白金コーティング触媒層 8 の剥離を防止しようとする方策は、現実的に採用が不可能な状態にある。

#### 発明が解決しようとする課題

本発明は、従前の水分発生用反応炉に於ける上述のような問題、即ち反応炉本体 A を構成する入口側及び出口側炉本体部材 1・2 の内部

空間内の温度を $H_2$ 。又は $H_2$ 。含有ガスの限界着火温度よりも相当に低い温度に保持していても、 $H_2$ 。濃度の高い混合ガスを使用している場合には、水分の発生中に $H_2$ 。への着火やガス供給源側への白金コーティング触媒層 8 の部分的な剥離を生ずることがあると云う問題を解決  
5 せんとするものであり、反応炉本体 A を大形化してその熱容量の増大を図ったり、或いは反応炉本体 A の冷却装置を大形化してその冷能力を大幅に高めるような方策によらず、極く小形の水分発生用反応炉でもって反応炉内の構造を改変することにより、水分発生用反応炉の運転中に於ける $H_2$ 。への着火やガス供給源側への逆火、白金コーティ  
10 グ触媒層 8 の剥離の発生を完全に防止できるようにした、水分発生用反応炉を提供するものである。

#### 発明の開示

本願発明者等は、従前の水分発生用反応炉に於ける $H_2$ 。への着火やガス供給源側への逆火の発生原因を究明する過程を通して、前記着火  
15 や逆火を生ずる原因が、①反応炉本体の内部空間側の金属外表面に形成されていた酸化物皮膜等の剥離脱落により、金属表面の触媒活性が発揮され、この金属表面の触媒活性によって $O_2$ 。と $H_2$ 。の反応が局部的に急激に、しかも高密度で進行し、金属表面の温度が部分的に $H_2$ 。含有ガスの限界着火温度以上に上昇したことによるか、又は②出口側反  
20 射体 6 の外周縁部近傍と対向する位置の白金コーティング触媒層 8 の温度が、局部的に限界着火温度以上に上昇したことによることを、知得した。

更に、本願発明者等は、反応炉本体 A 内の入口側内部空間 3 や入口側反射体 5、金属フィルター 7 等を除いても、高い反応率でもって水分  
25 の発生が可能であることを知得した。

本発明は、本願発明者等の上記知得に基づいて創作されたものであり、請求項 1 に記載の発明は、ガス供給口を有する入口側炉本体部材と水分ガス取出口を有する出口側炉本体部材とを対向させて組み合わせ、両者を溶接することにより形成した内部空間を有する反応炉本体と、

前記反応炉本体の内部空間内にガス供給口と対向状に配設した入口側反射体と、前記内部空間内に水分ガス取出口と対向状に配設した出口側反射体と、前記出口側炉本体部材の内壁面に形成した白金コーティング触媒層とから形成され、ガス供給口から反応炉本体の内部空間内へ供給した水素と酸素を前記白金コーティング触媒層に接触させてその反応性を活性化させることにより、水素と酸素を非燃焼の状態下で反応させて水を発生させる構成としたことを、発明の基本構成とするものである。

請求項 2 に記載の発明は、請求項 1 の発明に於いて、入口側炉本体部材及び出口側炉本体部材の内壁面に底面が平面状の円形の凹部を形成し、また、前記入口側反射体及び出口側反射体の外周端縁部の炉本体部材の底面と対向する側にテーパ部を形成し、更に、入口側反射体及び出口側反射体を入口側炉本体部材及び出口側炉本体部材へ夫々の底面と隙間を保持した状態で固定するようにしたものである。

請求項 3 に記載の発明は、ガス供給口を有する入口側炉本体部材と水分ガス取出口を有する出口側炉本体部材とを対向させて組み合わせ、両者を溶接することにより形成した内部空間を有する反応炉本体と、前記反応炉本体の内部空間内にガス供給口及び水分ガス取出口と対向状に配設した反射体と、前記出口側炉本体部材の内壁面に形成した白金コーティング触媒層とから形成され、ガス供給口から反応炉本体の内部空間内へ供給した水素と酸素を前記白金コーティング触媒層に接触させてその反応性を活性化させることにより、水素と酸素を非燃焼の状態下で反応させて水を発生させることを発明の基本構成とするものである。

請求項 4 の発明は、請求項 3 の発明に於いて、入口側炉本体部材及び出口側炉本体部材の内壁面に底面が平面状の円形の凹部を形成し、また、前記反射体の外径を前記円形の凹部の内径より僅かに小さくし、更に反射体の外周端縁部の出口側炉本体部材の底面と対向する側にテーパ部を形成し、そして、前記反射体を出口側炉本体部材へその底

面と隙間を保持した状態で固定するようにしたものである。

請求項 5 の発明は、請求項 1 又は請求項 3 の発明に於いて、白金コーティング触媒層をバリアー皮膜とその上に固着した白金コーティング皮膜とから形成するようにしたものである。

- 5 請求項 6 の発明は、請求項 1 又は請求項 3 の発明に於いて、反応炉本体の内部空間内の白金コーティング触媒層を設けた部分を除くその他の部分及び反射体に、非触媒性のバリアー皮膜を形成するようにしたものである。

- 10 請求項 7 の発明は、請求項 5 又は請求項 6 の発明に於いて、バリアー皮膜を  $TiN$ 、 $TiC$ 、 $TiCN$ 、 $TiAlN$ 、 $Al_2O_3$ 、 $Cr_2O_3$ 、 $SiO_2$ 、 $CrN$  の中の何れかから成るバリアー皮膜薄膜としたものである。

- 15 請求項 8 の発明は、請求項 1 又は請求項 3 の発明に於いて、入口側炉本体部材のガス供給口に、水素と酸素の混合ガスである原料ガスを供給する原料ガス混合供給装置を取り付けるようにしたものである。

- 20 請求項 9 の発明は、請求項 8 の発明に於いて、原料ガス供給装置が、水素を供給する水素供給管と、酸素を供給する酸素供給管と、両供給管の下流端部を合流して原料ガス供給口に接続する接続器とから形成され、且つ接続器が、ガスの流動方向に複数の小径管部分と大径管部分とが交互に並ぶ構造のものとしたものである。

請求項 10 の発明は、請求項 1 又は請求項 3 の発明に於いて、入口側炉本体部材及び出口側炉本体部材の外壁面に反応炉本体を所定の温度に加熱保持する温度制御装置を取り付けるようにしたものである。

- 25 請求項 11 の発明は、請求項 10 の発明に於いて、温度制御装置を、反応炉本体を冷却する冷却器を備えたものとしたものである。

請求項 12 の発明は、請求項 11 の発明に於いて、冷却器を、反応炉本体の外面部に取り付けられた放熱フィンとするようにしたものである。

#### 図面の簡単な説明

図 1 は、本発明の第 1 実施形態に係る水分発生用反応炉本体の縦断面図である。

図 2 は、白金コーティング皮膜の形成状態を示す部分縦断面図である。

5 図 3 は、バリアー皮膜の形成状態を示す部分縦断面図である。

図 4 は、本発明の第 2 実施形態に係る水分発生用反応炉本体の縦断面図である。

図 5 は、本発明の第 3 実施形態に係る水分発生用反応炉本体の縦断面図である。

10 図 6 は、従前の水分発生用反応炉本体の縦断面図である。

#### 符号の説明

A は反応炉本体、 $H_2$  は水素ガス、 $O_2$  は酸素ガス、G は混合ガス、L は隙間、V は内部空間、 $\alpha$  は反射体外周縁部のテーパ角、1 は入口側炉本体部材、1 a はガス供給口、1 b は接続用金具、2 は出口側炉本体部材、2 a は水分ガス取出口、2 b は接続用金具、5 は入口側反射体、6 は出口側反射体、8 は白金コーティング触媒層、8 a はバリアー皮膜、8 b は白金コーティング皮膜、9 は入口側炉本体部材内壁面のバリアー皮膜、10 は入口側反射体外表面のバリアー皮膜、11 は出口側反射体外表面のバリアー皮膜、13・14 は固定ボルト、15 は溶接部、16 は取付用ボルト孔、17 は反射体、18 はシース型温度計の取付孔、19 は反射体外表面のバリアー皮膜、20 は原料ガス混合供給装置、21 は水素供給管、22 は酸素供給管、23 は接続器、24 は温度制御装置、25 はヒータ、26 は冷却器、27 はヒータ押え、27 a は冷却フィン。

#### 25 発明を実施するための形態

以下、図面に基づいて本発明の各実施の形態を説明する。

##### 第 1 の実施形態

図 1 は本発明の第 1 実施形態に係る水分発生用反応炉の断面図である。図 1 に於いて A は反応炉本体、V は内部空間、L は隙間、1 は入



口側炉本体部材、1 a はガス供給口、2 は出口側炉本体部材、2 a は水分ガス取出口、5 は入口側反射体、6 は出口側反射体、8 は白金コーティング触媒層、8 a はバリヤー皮膜、8 b は白金コーティング皮膜、9・10・11 はバリヤー皮膜である。尚、図では省略されているが、固定ボルト13・14 及びスペーサー13 a・14 a の外表面にもバリヤー皮膜が形成されている。また出口側炉本体部材2 の内表面のスペーサー13 a・14 a が接当する部分及びその近傍には、白金コーティング皮膜8 b が形成されていない。

水分発生用反応炉本体Aはステンレス鋼（S U S 3 1 6 L）製の入口側炉本体部材1 と出口側炉本体部材2 とを対向状に組み合わせて、気密状に溶接することにより、円形の中空デスク状に形成されている。

前記入口側炉本体部材1 には、その内部に底面が平面状の円形の凹部が設けられており、ガス供給口1 a が凹部内へ連通されている。また、出口側炉本体部材2 には、内部に底面が平面状の円形の凹部が設けられており、水分ガス取出口2 a が凹部内へ連通されている。更に、両本体部材1・2 の外周端には、内向きにフランジ体が夫々形成されており、両フランジ体を対向させて気密状に溶接15することにより、水分発生用反応炉本体Aが構成されている。

尚、本第1実施形態では、両炉本体部材1・2 の円形の凹部の底面を平面状としているが、これを球面状の底面としてもよいことは勿論である。

前記入口側反射体5 は円形の盤状体であり、その中心点を入口側炉本体部材1 のガス供給口1 a と対向させた状態で、炉本体部材1 の底面との間に隙間Lをにおいて、固定用ボルト14により炉本体部材1 へ固定されている。尚、当該入口側反射体5 はステンレス鋼（S U S 3 1 6 L）製であり、その直径は円形の凹部の内径よりもやや小径に設定されている。

同様に、前記出口側反射体6 は、入口側反射体5 とほぼ同形状に形成されており、その中心点を出口側炉本体部材2 の水分ガス取出口2

a と対向させた状態で、炉本体部材 2 との間に隙間 L をおいて、固定用ボルト 1 3 により炉本体部材 2 へ固定されている。

尚、入口側反射体 5 及び出口側反射体 6 の各炉本体部材 1・2 と対向する側の外周縁部は、図 1 に示すように適宜の傾斜角  $\alpha$  のテーパ面に仕上げられている。入口側反射体 5 にあつては、当該傾斜角  $\alpha$  を設けることにより、ガス供給口 1 a より流入した混合ガス G が円滑に内部空間 V 内へ拡散された状態で放出されるからである。また出口側反射体 6 にあつては、反射体 6 と白金コーティング触媒層 8 との距離が一定であると、反射体の外周端と対向する部分の白金コーティング触媒層 8 の近傍に発熱が集中するからであり、図 1 に示すように隙間 L を徐々に狭まくなるようにすることにより、前記局部的に集中する発熱が防止される。本第 1 実施形態では、両反射体 5・6 を固定ボルト 1 3・1 4 により固定するようにしているが、適宜の支持片（図示省略）を介設して炉本体部材側へ夫々溶接により固定するようにしてもよい。

尚、本実施形態では、固定ボルト 1 3・1 4 の頭部が締め込み後にスポット溶接され、所謂緩み止め処理が行なわれている。

また、スペーサー 1 3 a の近傍の出口側炉本体部材 2 の内壁面には、前述のようにボルト 1 3 の局部的な加熱を防止するために、白金コーティング皮膜 8 b が形成されていない。

ガス供給口 1 a を通して入口側反射体 5 へ向けて噴射された混合ガス G は、反射体 5 の表面へ衝突したあと、隙間 L を通して矢印方向に噴射され、内部空間 V 内で拡散される。また、内部空間 V 内へ噴射された混合ガス G は、白金コーティング触媒層 8 へ衝突接触し、これにより所謂触媒活性化されると共に、出口側反射体 1 2 と白金コーティング触媒層 8 との隙間 L を通して水分ガス取出口 2 a の方向に流入する。

更に、前記白金コーティング触媒層 8 への衝突接触や隙間 L を通過する間に、これと接触することにより活性化された  $H_2$  と  $O_2$  とは、

所謂非燃焼の状態下で反応をし、水が生成される。

そして、生成された水分ガス（水蒸気）は、出口側反射体 6 と白金コーティング触媒層 8 との隙間 L を通して水分ガス取出口 2 a へ導出されて行く。

- 5 前記白金コーティング触媒層 8 は S U S 3 1 6 L 製の出口側炉本体部材 2 の内表面の全域（但し、スパーサー 1 3 a が接触する部分の近傍は省かれている）に形成されており、図 2 に示すように、炉本体部材 2 の内表面に T i N 製のバリヤー皮膜 8 a を形成したあと、当該バリヤー皮膜 8 a の上に白金コーティング皮膜 8 b が形成されている。
- 10 即ち、前記バリヤー皮膜 8 a と白金コーティング皮膜 8 b とによって白金コーティング触媒層 8 が構成されている。

前記白金コーティング皮膜 8 b の厚さは 0. 1  $\mu$  m ~ 3  $\mu$  m 位いが適当であり、本実施態様に於いては約 1  $\mu$  m の厚さの白金コーティング皮膜 8 b が形成されている。また、バリヤー皮膜 8 a の厚さは 0.

- 15 1  $\mu$  m ~ 5  $\mu$  m 程度が最適であり、本実施態様では約 2  $\mu$  m の厚さの T i N 製のバリヤー皮膜が形成されている。 前記 T i N 製のバリヤー皮膜は、白金コーティング触媒層 8 を形成する出口側炉本体部材 2 だけでなく、入口側炉本体部材 1 の内表面や両反射体 5・6 の外表面にも、T i N 製のバリヤー皮膜 9・10・11 が形成されている。図
- 20 3 は入口側炉本体部材 1 の内表面のバリヤー皮膜 9 の形成状態を示すものである。

- 即ち、各バリヤー皮膜 8 a・9・10・11 の形成に際しては、先ず、各部材の内表面に適宜の表面処理を施し、ステンレス鋼表面に自然形成されている各種金属の酸化膜や不働態膜を除去する。次に各部材に T i N によるバリヤー皮膜 8 a・9・10・11 の形成を行なう。
- 25 本実施態様に於いてはイオンプレーティング工法により厚さ約 2  $\mu$  m の T i N 製バリヤー皮膜 8 a・9・10・11 を形成している。

前記バリヤー皮膜 8 a・9・10・11 の材質としては T i N の外に T i C、T i C N、T i A l N 等を使用することが可能である。こ

れ等は、非触媒性であり、しかも耐還元性及び耐酸化性に優れているからである。

また、バリヤー皮膜 8 a ・ 9 ・ 1 0 ・ 1 1 の厚さは前述の通り 0 . 1  $\mu$  m ~ 5  $\mu$  m 程度が適当である。何故なら、厚さが 0 . 1  $\mu$  m 以下であると、バリヤー機能が十分に発揮されず、また逆に、厚さが 5  $\mu$  m を越えるとバリヤー皮膜そのものの形成に手数がかかるうえ、加熱時の膨張差等が原因となって、バリヤー皮膜の剥離等を生ずる虞れがあるからである。

更に、バリヤー皮膜の形成方法としては、前記イオンプレーティング工法以外に、イオンスパッタリング法や真空蒸着法等の P V D 法や化学蒸着法（C V D 法）、ホットプレス法、溶射法等を用いることも可能である。

前記出口側炉本体部材 2 の方は、バリヤー皮膜 8 a の形成が終わると、引き続きその上に白金コーティング皮膜 8 b を形成する。本実施態様に於いては、イオンプレーティング工法により厚さ約 1  $\mu$  m の白金コーティング皮膜 8 b を形成している。

前記白金コーティング皮膜 8 b の厚さは 0 . 1  $\mu$  m ~ 3  $\mu$  m 程度が適当である。何故なら、厚さが 0 . 1  $\mu$  m 以下の場合には、長期に亘って触媒活性を発揮することが困難となり、また逆に、厚さが 3  $\mu$  m 以上になると、白金コーティング皮膜 8 b の形成費が高騰するうえ、3  $\mu$  m 以上の厚さにしても、触媒活性度やその保持期間にほとんど差がなく、しかも加熱時に膨張差等によって剥離を生ずる虞れがあるからである。

また、白金コーティング皮膜 8 b の形成方法は、イオンプレーティング工法以外にイオンスパッタリング法、真空蒸着法、化学蒸着法、ホットプレス法等が使用可能であり、更に、バリヤー皮膜 8 a が T i N 等の導電性のある物質の時にはメッキ法も使用可能である。

上記図 1 乃至図 3 に示した本発明の第 1 実施形態に於いて、入口側炉本体部材 1 の内表面や入口側反射体 5 の外表面、出口側反射体 1 2

の外表面に夫々バリアー皮膜 9・10・11 を形成するのは、前述の通り、各部材 1・5・12 の金属外表面が触媒作用の機能を果さないようにするためである。

このような観点からすれば、入口側炉本体部材 1、入口側反射体 5 及び出口側反射体 6 等を非触媒性で且つ耐還元性を有する材質で形成するようにしてもよい。

## 第 2 の実施形態

図 4 は本発明の第 2 実施形態に係る水分発生用反応炉の縦断面図である。当該第 2 実施形態に於いては、反応炉本体 A の内部空間 V 内に  
10 厚板状の 1 枚の反射体 17 が、ボルト 13・14 によって出口側炉本体部材 2 側に固定されており、1 枚の反射体 17 を用いるようにした点を除いて、その他の構成は図 1 に示した第 1 実施形態の場合とほぼ同一である。

当該図 4 に於いて、18 はシース型温度計の取付用孔であり、入口  
15 側炉本体部材 1 内へシース型温度計（図示省略）が挿入されている。また、8 は白金コーティング触媒層であり、出口側炉本体部材 2 の内壁面に形成されている。

更に、入口側炉本体部材 1 及び反射体 17 等の外表面には、TiN 等のバリアー皮膜 9・19 が形成されている。

20 前記反射体 17 は、比較的厚さの大きな材料、例えば内部空間 V の横幅寸法の約 1/2 以上の厚さを有する材料でもって形成されており、また、その外径は、内部空間 V の内径より僅かに小さな外形を有する円盤形に形成されている。更に、反射体 17 の外周端部の出口側炉本体部材 2 の内壁面に対向する側面は、角度  $\alpha$  のテーパ面に形成され  
25 ている。

尚、図 4 に於いては、炉本体部材 1・2 及び反射体 17 をステンレス鋼により形成し、また、入口側炉本体部材 1 の内壁面と反射体 17 の外表面にはバリアー皮膜 9・19 を形成するようにしている。しかし、入口側炉本体部材 1 及び反射体 17 を非触媒性の素材でもって形

成してもよいことは、前記第2実施形態の場合と同じである。

当該第2実施形態の反応炉本体Aでは、 $H_2$ ガスへの着火やガス供給源側への逆火を完全に防止することができるだけでなく、反射体17の熱容量が大きくなることにより、白金コーティング触媒層8の中央部分の過度な温度上昇をより有効に防止することができる。また、  
5 反応炉本体Aの内部空間の容積（即ち、デッドゾーン）を減少することができ、反応炉本体Aの小形化を図ったり、或いは、原料ガスの $O_2$ と $H_2$ の混合比を変えた場合のガスの置換性を速める上で、好都合となる。

#### 10 実施例 1

図1の第1実施形態に於いて、反応炉本体Aの外径114mm $\phi$ 、厚さ34mm $\phi$ 、内部空間Vの厚さ14mm、内部空間Vの内径108mm $\phi$ 、入口側反射体5及び出口側反射体6の外径80mm $\phi$ 、厚さ2mm、隙間Lの大きさ1mm、テーパ面の長さ10mm、白金コーティング触媒層8（TiNバリヤー皮膜5 $\mu m$ +ptコーティング皮膜0.3 $\mu m$ ）、入口側炉本体部材1及び両反射体5・12のバ  
15 リヤー皮膜9・19をTiN（5 $\mu m$ ）と夫々した。

$H_2$ が20%リッチの $O_2$ と $H_2$ との混合ガスGを原料とし、且つシース型温度計（図示省略）の温度（合計4ヶ所）が450℃～500℃の条件下で100時間以上の連続水分発生（水分発生量1000  
20 sccm）を行ったが、 $H_2$ ガスへの着火や逆火及び白金コーティング触媒層8の剥離等は皆無であった。

#### 実施例 2

図4の第2実施形態に於いて反応炉本体Aの外径114mm $\phi$ 、厚  
25 さ30mm、内部空間Vの厚さ10mm、内部空間Vの内径108mm $\phi$ 、反射体17の厚さ6mm、外径102mm $\phi$ 、出口側炉本体部材2との隙間L1mm、入口側炉本体部材1との間隔3mm、テーパ面の長さ約21mm（テーパ角 $\alpha = 8^\circ$ ）、白金コーティング触媒層8（TiNバリヤー皮膜8a5 $\mu m$ +ptコーティング皮膜8b

0.3  $\mu\text{m}$ )、入口側炉本体部材1の内壁面及び反射体17の外表面のバリヤー皮膜9・19をTiN(5  $\mu\text{m}$ )と夫々した。

前記実施例1の場合とほぼ同一条件下で連続水分発生試験を行ったが、 $\text{H}_2$ ガスへの着火や逆火、白金コーティング触媒層8の剥離等は  
5 第1実施例の場合と同様に皆無であった。

### 第3の実施形態

図5は、本発明の第3実施形態に係る水分発生用反応炉の縦断面図である。

当該第3実施形態は、第1実施形態の反応炉本体Aに原料ガス混合  
10 供給装置20及び温度制御装置24を夫々取り付けしたものであり、反応炉本体Aそのものは前記図1のものと全く同一である。

また、図5の第3実施形態では、反応炉本体Aとして図1の反応炉本体Aを使用しているが、これに代えて、図4の第2実施形態の反応炉本体Aを使用することも可能である。

15 前記原料ガス混合供給装置20は、図5に示すように、水素を供給する水素供給管21と、酸素を供給する酸素供給管22と、両供給管21・22の下流端部を合流して入口側炉本体部材1のガス供給口1aに接続する接続器23とから形成されている。

また、前記接続器23は、ガスの流動方向に複数の小径管部分23  
20 a・23cと大径管部分23b・23dとが交互に並ぶ構造となっている。

尚、第2大径管部分23dは、入口側炉本体部材1のガス供給口1aへ溶接等により固着されている。

前記温度制御装置24は反応器本体Aを所定の温度に加熱保持する  
25 ためのものであり、図5に示すように、入口側炉本体部材1及び出口側炉本体部材2を加熱するヒータ25と、ヒータ25をオン・オフ制御する制御器(図示せず)と、反応炉本体Aを冷却する冷却器26とを備えている。

前記ヒータ25は、いわゆるラビットヒータであり、円板状のヒー

タ押え 27 により反応炉本体 A に接触固定されている。また、制御器は、ヒータ 25 をオン・オフすることにより、反応炉本体 A の温度（炉温度）を、所定の適正温度（水素混合ガスの発火温度よりも低い温度であって、水素と酸素との反応が効果的に行なわれる温度であり、一般に、400℃以下に設定しておくことが好ましい）に保持するものである。更に、冷却器 26 は各ヒータ押え 27 に櫛歯状の冷却フィン 27a を取り付けたものであり、水素と酸素との反応熱による炉温度の過度な上昇を防止して、水分発生反応の安定化を図る。

#### 発明の効果

- 10 本発明に於いては、反応炉本体 A の内部空間 V 内の白金コーティング触媒層 8 を形成した以外の部分を、非触媒性で且つ耐還元性、耐酸化性に優れたバリアー皮膜 8a で覆う構成としているため、水分発生炉の運転中に触媒作用を有する生の金属表面が露出することがない。その結果、 $H_2$  濃度の高い混合ガス G を用いて、長期に亘って水分発生を行なっても、前記白金コーティング触媒層 8 以外の部分の金属表面の触媒作用によって  $O_2$  と  $H_2$  が局部的に激しく反応することが皆無となり、これによって従前のような  $H_2$  への着火やガス供給源側への逆火の発生がより完全に防止される。

- 20 また、反応炉本体 A の内部空間 V 内には 1 枚の反射体 17 又は 2 枚の反射体 5・12 のみを配設し、従前の如き金属フィルターを除く構成としているため、前記各反射体の外径及び厚みを比較的大きくすることができる。その結果、白金コーティング触媒層 8 の中心部の温度上昇を有効に防止することができ、白金コーティング触媒層 8 の局所的な剥離を皆無にすることができる。

- 25 更に、各反射体の厚みを大きくすると共に、その外径を反応炉本体 A の内部空間 V の内径より僅かに小さいだけの大きな外径寸法とし、更に反射体の外周縁部にテーパ角  $\alpha$  を設けるようにしている。そのため、反射体の熱容量が大きくなって白金コーティング触媒層 8 の中心部分の過度な温度上昇を有効に防止することができる。加えて、反



反応炉本体 A の内部空間 V のデッドスペースをより少なくでき、反応炉のガス置換性が容易となる。これによって希釈ガスを用いた少流量の水分発生が可能となると共に、反応炉本体 A の一層の小形化が可能となる。

- 5      そのうえ、各反射体の外周部にテーパ角  $\alpha$  を設けているため、白金コーティング触媒層 8 の外周部に於ける局所的な温度上昇が防止される。

- 10      原料ガス混合供給装置 20 を設けた場合には、接続器 23 を通して、酸素と水素とが十分に混合された原料ガス G がガス供給口 1 a へ供給される。そのため、水素と酸素との反応応答性が向上し、このことによって、水分発生反応率が更に向上する。

- 15      また、温度制御装置 24 を設けた場合にはヒータ 25 の作動によって、反応炉本体 A の作動初期に於いても反応炉本体 A を 400 ~ 450 °C の温度に保つことができ、反応炉本体 A の作動の初期から、高い水素と酸素の水分発生反応率を得ることができる。

更に、反応炉本体 A に冷却フィン 27 a から成る冷却器 26 を取り付けて、放熱を促進させるようにしている。そのため、水分発生反応熱によって反応炉本体 A の温度が上昇しても、放熱によって反応炉本体 A の温度が適正に維持される。

## 請 求 の 範 囲

1. ガス供給口を有する入口側炉本体部材と水分ガス取出口を有する  
出口側炉本体部材とを対向させて組み合せ、両者を溶接することにより形成した内部空間を有する反応炉本体と、前記反応炉本体の内部空間内にガス供給口と対向状に配設した入口側反射体と、前記内部空間内に水分ガス取出口と対向状に配設した出口側反射体と、前記出口側炉本体部材の内壁面に形成した白金コーティング触媒層とから形成され、ガス供給口から反応炉本体の内部空間内へ供給した水素と酸素を前記白金コーティング触媒層に接触させてその反応性を活性化させることにより、水素と酸素を非燃焼の状態で反応させて水を発生させる構成としたことを特徴とする水分発生用反応炉。  
5
2. 入口側炉本体部材及び出口側炉本体部材の内壁面に底面が平面状の円形の凹部を形成し、また、前記入口側反射体及び出口側反射体の外周端縁部の炉本体部材の底面と対向する側にテーパ部を形成し、更に、入口側反射体及び出口側反射体を入口側炉本体部材及び出口側炉本体部材へ夫々の底面と隙間を保持した状態で固定するようにした請求項 1 に記載の水分発生用反応炉。  
10  
15
3. ガス供給口を有する入口側炉本体部材と水分ガス取出口を有する出口側炉本体部材とを対向させて組み合せ、両者を溶接することにより形成した内部空間を有する反応炉本体と、前記反応炉本体の内部空間内にガス供給口及び水分ガス取出口と対向状に配設した反射体と、前記出口側炉本体部材の内壁面に形成した白金コーティング触媒層とから形成され、ガス供給口から反応炉本体の内部空間内へ供給した水素と酸素を前記白金コーティング触媒層に接触させてその反応性を活性化させることにより、水素と酸素を非燃焼の状態で反応させる構成としたことを特徴とする水分発生用反応炉。  
20  
25
4. 入口側炉本体部材及び出口側炉本体部材の内壁面に底面が平面状の円形の凹部を形成し、また、前記反射体の外径を前記円形の凹部の内径より僅かに小さくし、更に反射体の外周端縁部の出口側炉本

体部材の底面と対向する側にテーパ部を形成し、そして、前記反射体を出口側炉本体部材へその底面と隙間を保持した状態で固定するようにした請求項 3 に記載の水分発生用反応炉。

5 5. 白金コーティング触媒層をバリヤー皮膜とその上に固着した白金コーティング皮膜とから形成するようにした請求項 1 又は請求項 3 に記載の水分発生用反応炉。

6. 反応炉本体の内部空間内の白金コーティング触媒層を設けた部分を除くその他の部分及び反射体に、非触媒性のバリヤー皮膜を形成するようにした請求項 1 又は請求項 3 に記載の水分発生用反応炉。

10 7. バリヤー皮膜を  $TiN$ 、 $TiC$ 、 $TiCN$ 、 $TiAlN$ 、 $Al_2O_3$ 、 $Cr_2O_3$ 、 $SiO_2$ 、 $CrN$  の中の何れかから成るバリヤー皮膜薄膜とした請求項 5 又は請求項 6 に記載の水分発生用反応炉。

15 8. 入口側炉本体部材のガス供給口に、水素と酸素の混合ガスである原料ガスを供給する原料ガス混合供給装置を取り付けるようにした請求項 1 又は請求項 3 に記載の水分発生用反応炉。

9. 原料ガス混合供給装置が、水素を供給する水素供給管と、酸素を供給する酸素供給管と、両供給管の下流端部を合流して原料ガス供給口に接続する接続器とから形成され、且つ接続器が、ガスの流動方向に複数の小径管部分と大径管部分とが交互に並ぶ構造のものとするようにした請求項 8 に記載する水分発生用反応炉。

20

10. 入口側炉本体部材及び出口側炉本体部材の外壁面に反応炉本体を所定の温度に加熱保持する温度制御装置を取り付けるようにした請求項 1 又は請求項 3 に記載の水分発生用反応炉。

11. 温度制御装置を反応炉本体を冷却する冷却器を備えたものとするようにした請求項 10 に記載の水分発生用反応炉。

25

12. 冷却器を、反応炉本体の外面部に取り付けられた放熱フィンとするようにした請求項 11 に記載の水分発生用反応炉。

## 要 約 書

本発明は水分発生用反応炉本体の内部に於ける水素ガスへの着火やガス供給源側への逆火の発生及び白金コーティング触媒層の剥離をより完全に防止して、水分発生用反応炉の安全性を一層高めると共に、

5 反応炉本体の内部空間のデッドスペースを少なくして、反応炉本体の一層の小形化を図ることを発明の主な目的とするものである。

そのため、本発明ではガス供給口 1 a を有する入口側炉本体部材 1 と水分ガス取出口 2 a を有する出口側炉本体部材 2 とを対向状に組み合わせ、両者を溶接することにより反応炉本体 A を形成し、その内部空間 V 内に反射体を設けると共に前記出口側炉本体部材 2 の内壁面に白金コーティング触媒層 8 を形成し、ガス供給口 1 a から反応炉本体 A の内部空間 V 内へ供給した水素と酸素を白金コーティング皮膜 8 b に接触させてその反応性を活性化させることにより、水素と酸素を非燃

10 焼の状態下で反応させ、水を発生させる。

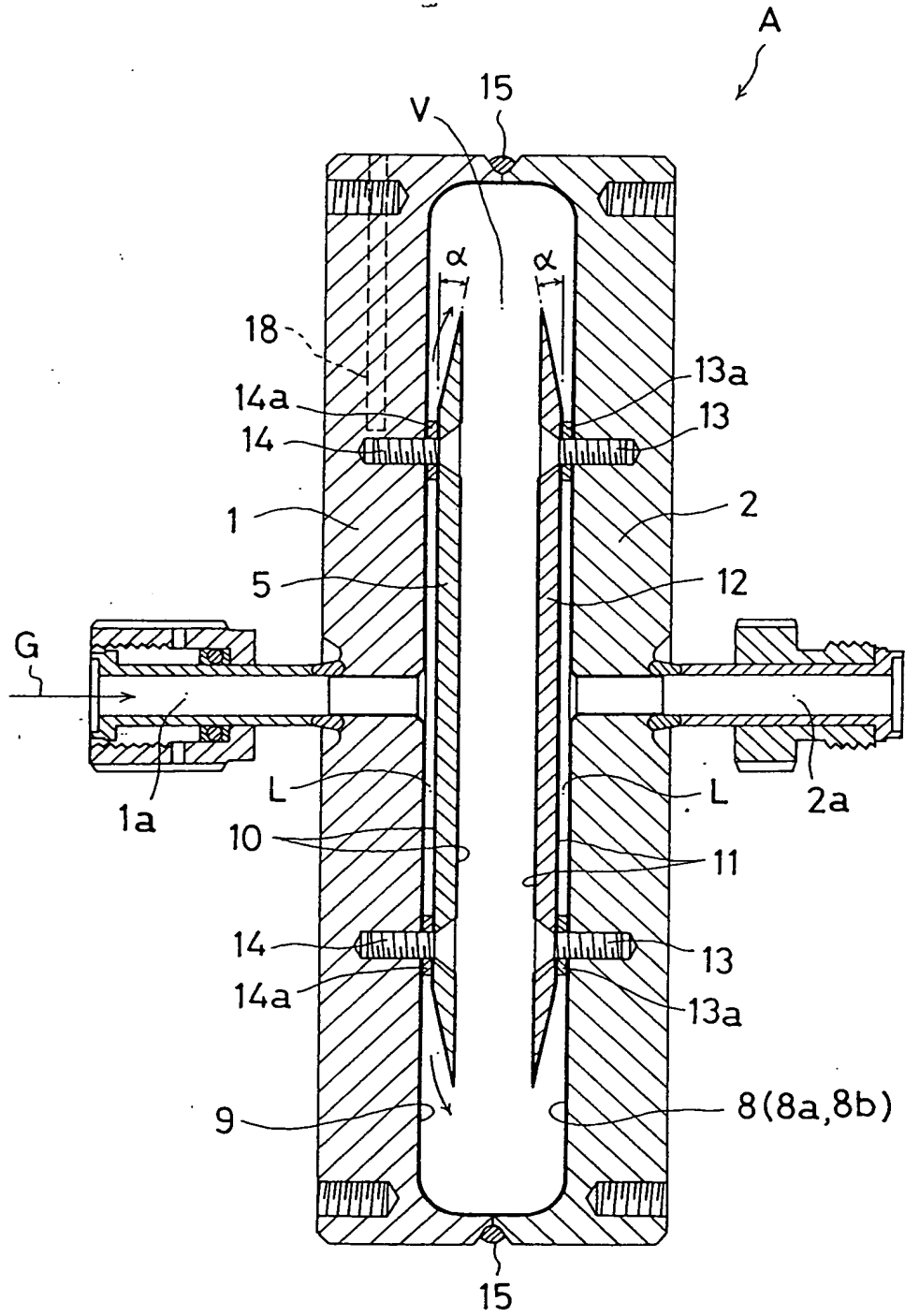


图 2

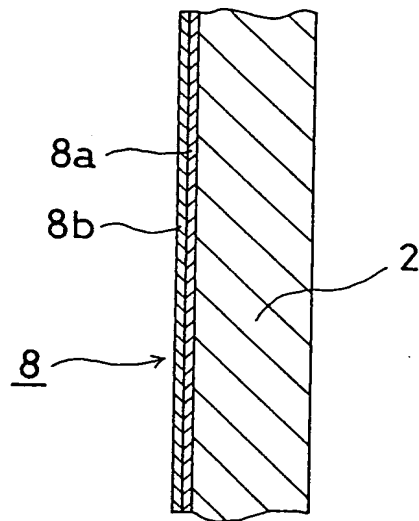


图 3

